

**PATENT ABSTRACTS OF JAPAN**(11)Publication number : **08-277123**(43)Date of publication of application : **22.10.1996**

(51)Int.Cl.

C03B 8/00

C03B 19/06

C03C 10/00

H01L 23/14

H05K 1/03

(21)Application number : **07-080966**(71)Applicant : **HITACHI METALS LTD**(22)Date of filing : **06.04.1995**(72)Inventor : **KURIHARA KOICHIRO  
ITO HIROYUKI  
TSUBOI TAKASHI****(54) PRODUCTION OF GLASS CERAMIC COMPOSITE SUBSTRATE**

(57)Abstract:

**PURPOSE:** To reduce the production cost and enable the production of a glass ceramic composite substrate by heat-treating a mixed powder of a glass raw material powder with a ceramic powder so as to provide a target composition at a temperature below the complete melting temperature of the glass raw material powder.

**CONSTITUTION:** A glass raw material powder and a ceramic powder are weighed and mixed so as to provide a target composition and the resultant mixed powder is then heat-treated at a temperature below the complete melting temperature for melting all the glass raw material powder. The heat-treated mixed powder is subsequently formed and the resultant compact is baked to produce a glass ceramic composite substrate. In this method for production, the heat-treating step corresponds to a melting to a pulverizing steps in a conventional process for producing a glass powder. The movement and diffusion of atoms among particles of the glass raw material powder are caused by heat-treating the glass raw material powder at the temperature below the complete melting temperature of the glass raw material powder to accelerate the vitrifying reaction. Since the produced glass is in a powdery form, the pulverizing step is usually unrequired. When the glass powder having a finer particle diameter is required, the pulverizing step is required. The sufficiently mixed glass raw material is required in order to sufficiently initiate the vitrifying reaction.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

16.07.1999

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

3369780

[Date of registration]

15.11.2002

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平 8 - 2 7 7 1 2 3

(43) 公開日 平成8年(1996)10月22日

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 0 3 B	8/00		C 0 3 B	8/00
	19/06			19/06
C 0 3 C	10/00		C 0 3 C	10/00
H 0 1 L	23/14	7511-4 E	H 0 5 K	1/03 6 1 0 D
H 0 5 K	1/03 6 1 0		H 0 1 L	23/14 S
審査請求 未請求 請求項の数 3		OL	(全 5 頁)	

(21) 出願番号 特願平7-80966

(22) 出願日 平成7年(1995)4月6日

(71) 出願人 000005083

日立金属株式会社

東京都千代田区丸の内2丁目1番2号

(72) 発明者 栗原光一郎

埼玉県熊谷市三ヶ尻5200番地日立金属株式会社磁性材料研究所内

(72) 発明者 伊藤 博之

鳥取県鳥取市南栄町33番地12号日立フェライト株式会社鳥取工場内

(72) 発明者 坪井 隆

鳥取県鳥取市南栄町33番地12号日立フェライト株式会社鳥取工場内

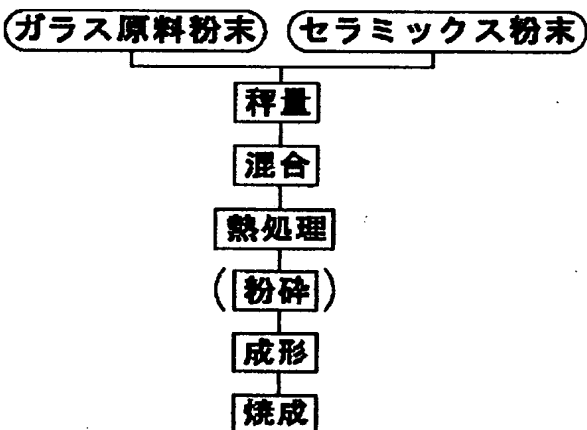
(74) 代理人 弁理士 大場 充

(54) 【発明の名称】 ガラスセラミックス複合基板の製造方法

(57) 【要約】

【目的】 製造コストが安い、ガラスセラミックス複合基板の製造方法を提供する。

【構成】 目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量し、混合した後、前記混合粉末をガラス原料粉末の全てが溶融する完全溶融温度未満で熱処理を行うガラスセラミックス複合基板の製造方法である。



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量し、混合した後、前記混合粉末をガラス原料粉末の全てが熔融する完全熔融温度未満で熱処理を行うことを特徴とするガラスセラミックス複合基板の製造方法。

【請求項 2】 目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量する工程、混合する工程、前記混合粉末をガラス原料粉末の全てが熔融する完全熔融温度未満で熱処理を行う工程、熱処理した粉末を成形する工程、成形体を焼成する工程から成ることを特徴とする請求項 1 に記載のガラスセラミックス複合基板の製造方法。

【請求項 3】 目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量する工程、混合する工程、前記混合粉末をガラス原料粉末が熔融する完全熔融温度未満で熱処理を行う工程、熱処理した粉末を粉砕する工程、粉砕した粉末を成形する工程、成形体を焼成する工程から成ることを特徴とする請求項 2 に記載のガラスセラミックス複合基板の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、電子部品搭載用基板または多層配線基板、さらには積層チップ部品の製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】従来、ガラスセラミック複合基板の製造方法は、図 2 に示すように、予め製造したガラス粉末とセラミック粉末を混合し、成形し、焼成する方法によっていた。即ち、ガラス粉末は目標組成となるように原料粉末を秤量し、白金坩堝に移し、各々の原料粉末の熔融温度以上に加熱し、完全に熔融させ、均質化させた後、溶融物を水中や金属板上に滴下させることにより急冷固化させ、更に所定の粒径になるように粉砕する方法で製造していた。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】従来の製造方法では、ガラス粉末の製造において、各々の原料粉末を熔融温度以上に加熱、均質化する必要があるが、通常のガラスの原料粉末には酸化ケイ素が含まれ、酸化ケイ素を完全に熔融するには白金坩堝中で 1400~1500℃程度の高温に加熱し、均質化させるために攪拌する必要がある。このため製造で使用する炉は特殊であり高価なものにならざるをえず、製造コストを低減するには限界があり、従って、基板の原価を低減することが困難であるという問題点があった。そこで、本発明は製造コストが安い、ガラスセラミックス複合基板の製造方法を提供することを目的とする。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】従来のガラス粉末の製造

方法は、目標組成となるように原料粉末を混合して、全ての原料粉末が熔融する温度まで昇温して、さらに攪拌を行うことが必要とされていた。この熔融攪拌工程について本発明者らは鋭意検討した結果、ガラス原料粉末の全てが完全に熔融する温度まで昇温しない、つまりガラス原料粉末の一部が粉末の状態でも、原料粉末のガラス化及び均質化は充分に行われることを見出し本発明に想到した。

【0005】すなわち、本発明は目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量し、混合した後、前記混合粉末をガラス原料粉末の全てが熔融する完全熔融温度未満で熱処理を行うことを特徴とするガラスセラミックス複合基板の製造方法である。さらに本発明は、ガラスセラミックス複合基板の製造方法において、目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量する工程、混合する工程、前記混合粉末をガラス原料粉末の完全熔融温度未満で熱処理を行う工程、熱処理した粉末を成形する工程、成形体を焼成する工程から成るものである。また、ガラスセラミックス複合基板の製造方法において、目標組成となるようにガラス原料粉末とセラミック粉末を秤量する工程、混合する工程、前記混合粉末をガラスを形成する原料粉末の完全熔融温度未満で熱処理を行う工程、熱処理した粉末を粉砕する工程、粉砕した粉末を成形する工程、成形体を焼成する工程から成るものである。

## 【0006】

【作用】本発明において、熱処理工程は、従来のガラス粉末製造工程での熔融工程から粉砕工程に相当する。ガラス原料粉の完全熔融温度未満での熱処理により、ガラス原料粉末間で原子の移動、拡散を起こさせ、ガラス化反応を促進させ、かつ、生成したガラスは粉末形状であるため、粉砕工程は通常不必要である。しかし、より微細な粒径のガラス粉末が必要なときには粉砕工程が必要となる。前記ガラス化反応を十分起こさせるためには、ガラス原料粉末は十分混合したものが必要である。また、反応性は原料粉末の粒径や表面状態、目的とするガラス組成や粒径等に依存するため、熱処理条件の温度及び時間は前記のパラメーターに応じて適宜決めることが出来る。

【0007】ガラス原料粉末は微細な方が原子間の移動、拡散が起こりやすく、一次粒子の粒径は 1 μm 以下が好ましい。但し、ホウ酸のように水に可溶のものはボールミルでの混合時に溶解してしまうので特に粒径を考慮する必要はない。酸化ケイ素の含有量の多いガラスほど、高温での熱処理が必要となる。また、生成するガラス粉末の粒径は熱処理温度が高くなるほど大きくなる傾向がある。

【0008】また、本発明において、熱処理温度はガラス原料粉の熔融温度未満であるため、ガラス原料粉とセラミックス原料粉は最初から混合する工程を採用でき

る。即ち、ガラス原料粉とセラミックス原料粉の混合粉はガラス原料粉の完全熔融温度以上になると、ガラス原料粉はセラミックス原料粉ともガラス化反応し、セラミックス原料粉の大部分がガラス化する可能性があるが、熱処理温度がガラス原料粉の完全熔融温度未満であれば、ガラス原料粉とセラミックス原料粉の反応性は低く、大部分のセラミックス原料粉は熱処理の影響をほとんど受けることがないため、ガラス原料粉とセラミックス原料粉を最初から混合しても問題ない。このため、従来行われていたガラス粉末と、セラミック粉末の混合工程が省略できる。

【0009】さらに、ガラス原料粉末やセラミック原料粉によっては、熱処理温度や熱処理時間の設定によっては、原料粉を秤量、混合、成形することにより、直接所望の基板を得ることも可能である。尚、熱処理工程で生成したガラスの一部ないしは全てが焼成時に結晶化する場合も本発明に含まれるものである。

【0010】

【実施例】以下に、実施例に基づいて、図1に示す工程の流れに沿って、詳述する。

(実施例1) 酸化物換算で表1の組成になるように、酸化アルミニウム、酸化ケイ素、炭酸カルシウム、炭酸ストロンチウム、酸化鉛、炭酸ナトリウム、炭酸カリウムの原料粉末を合計で1kgになるように秤量した。これらを5リットルのボールミルポットに入れて、純水を加えて20時間ボールミル混合を行った。次にポットからスラリーを取り出し、ステンレス製のバットに移し、乾燥機中、120℃で水分を蒸発させた。乾燥固化した混合粉を乳鉢で解砕し、アルミナ製のこう鉢の中に入れて大気中、800℃で2時間の熱処理を行った。熱処理した粉末を $\theta/2\theta$ 法によりX線回折装置で回折パターンを調べたところ、図3に示すように酸化アルミニウム(コランダム)のピークとガラス特有のハローが観察され、酸化アルミニウム粉末とガラス粉末の混合粉であることを確認した。

【0011】

【表1】

酸化物	重量部 (%)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	51
SiO <sub>2</sub>	32
CaO	3.5
SrO	3.5
PbO	7.5
Na <sub>2</sub> O	1.5
K <sub>2</sub> O	1

【0012】前記熱処理した粉末に、有機バインダーとしてPVB(ポリビニルブチラル)、可塑剤としてBPBG(ブチルフタリルブチルグリコレート)、有機溶剤としてエタノールおよびブタノールを各々添加してボールミルで混合し、スラリーを作成した。このスラリーをドクターブレード法によりシリコン処理を行ったポリエステル製のキャリアフィルム上に厚さ200 $\mu$ mのシ

ート状に形成した。これをフィルムから剥離し、約50mm角のシートに切断し、大気中、500℃で脱バインダーを行い、続いて、900℃で1時間焼成した。さらに、銀-パラジウムを主成分とする表面電極を塗布し、800℃で焼き付け、電子部品搭載用基板を得た。

【0013】前記基板を3点曲げ試験により、抗折強度の評価をしたところ、2000kg/cm<sup>2</sup>以上で基板として実用できることを確認した。焼成した基板の表面を $\theta/2\theta$ 法によりX線回折装置で回折パターンを調べたところ、図4に示すように酸化アルミニウム(コランダム)のピークとガラスが結晶化してアルカリ長石((Na, K)(Si<sub>3</sub>Al)O<sub>8</sub>)のピークが観察された。

【0014】(実施例2) 酸化物換算で表2の組成になるように、酸化アルミニウム、酸化ケイ素、炭酸カルシウム、炭酸ストロンチウム、ほう酸の原料粉末を合計で1kgになるように秤量した後、実施例1と同一の工程により熱処理を行った。但し、熱処理は800℃の温度で2時間行った。次に、熱処理した粉末の粒径を細かくするために、粉末を5リットルのボールミルポットに入れて、純水を加えて20時間ボールミルにより粉碎した。次にポットからスラリーを取り出し、ステンレス製のバットに移し、乾燥機中、120℃で水分を蒸発させた。乾燥固化した粉碎粉を乳鉢で解砕し、解砕した粉末を $\theta/2\theta$ 法によりX線回折装置で回折パターンを調べたところ、図5に示すように酸化アルミニウム(コランダム)のピークとガラス特有のハローが観察され、酸化アルミニウム(コランダム)粉末とガラス粉末の混合粉であることを確認した。

【0015】

【表2】

酸化物	重量部 (%)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	28.5
SiO <sub>2</sub>	45
CaO	8.5
SrO	7
B <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	11

【0016】前記熱処理した粉末に、有機バインダーとしてPVB(ポリビニルブチラル)、可塑剤としてBPBG(ブチルフタリルブチルグリコレート)、有機溶剤としてエタノールおよびブタノールを各々添加してボールミルで混合し、スラリーを作成した。このスラリーをドクターブレード法によりシリコン処理を行ったポリエステル製のキャリアフィルム上に厚さ100 $\mu$ mのシート状に形成した。これをフィルムから剥離し、約50mm角のシートに切断し、所定の導電パターンを銀ペーストにより印刷した。位置合わせ用のガイド穴が設けられているステンレス製の枠にシートを貼り付けた。上記グリーンシートが貼り付けられた枠を、位置合わせ用のガイドピンが設けられている穴明け金型に、前記枠のガ

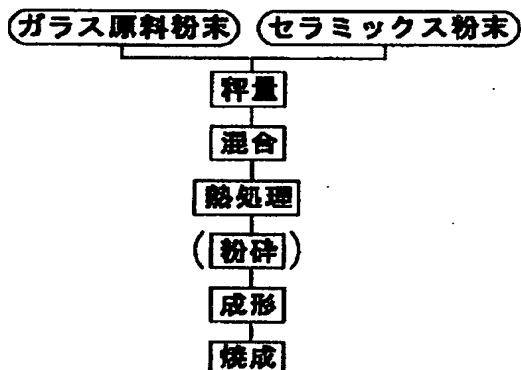
イド穴を合わせてセットし、所定の位置にスルーホールを形成した。

【0017】次に、スルーホールが形成されたグリーンシートに、前記と同様にガイドピンとガイド穴による位置合わせ方法により、スルーホールの位置に対して所定の導電パターンの位置が合うように、銀ペーストにより導電パターンを印刷した。次に、前記印刷されたグリーンシートを、前記と同様にガイドピン、ガイド穴を用いた位置合わせ方法により、所定の大きさに切断し、積層金型内に、成形体内部の導電パターンが目的とする構造になるように積み重ねた。次に、これら積み重ねたグリーンシートを、温度120℃、圧力200kg/cm<sup>2</sup>の条件で熱圧着し、積層体を作製した。これを、大気中、500℃で脱バインダーを行い、続いて、900℃で1時間焼成した。さらに、銀-パラジウムを主成分とする表面電極を塗布し、800℃で焼き付け、電子部品搭載用多層基板を得た。

【0018】前記基板を3点曲げ試験により、抗折強度の評価をしたところ、2000kg/cm<sup>2</sup>以上で基板として実用できることを確認した。焼成した基板の表面を $\theta/2\theta$ 法によりX線回折装置で回折パターンを調べたところ、図6に示すように酸化アルミニウム（コランダム）のピークとガラスの一部が結晶化してCaSiO<sub>3</sub>のピークとガラスのハローが観察された。

【0019】（実施例3）前記実施例2と同様の材料、方法で積層体を得た後、切断機でチップ形状に切り離した。これを、大気中、500℃で脱バインダーを行い、続いて、900℃で1時間焼成した。次に、バレル研磨により焼成体の稜部の面取りを行った。さらに、銀を主

【図1】



成分とするペーストを端子電極部分に塗布し、800℃で焼き付けた。最後に、この端子電極上に電解バレルめっきにより、Niめっきおよび半田めっきを施し、積層チップ部品を得た。前記積層チップ部品を3点曲げ試験により、抗折強度評価したところ、2000kg/cm<sup>2</sup>以上で積層チップ部品の基板として実用できることを確認した。

【0020】

【発明の効果】本発明によると、従来の製造方法に比べて、ガラスの原料粉末をガラス化させる炉は、通常のセラミックス製品など粉末冶金法で用いる一般的なもので良く、最高温度も1000℃以下で十分なため、設備コストが大幅に低減できる。また、ガラス原料粉末とセラミックス粉末を最初から混合するため、工程が簡便になる。従って、製造コストの著しい低減が可能となる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明におけるガラスセラミックス複合基板の製造工程を示す図である。

【図2】従来の技術におけるガラスセラミックス複合基板の製造工程を示す図である。

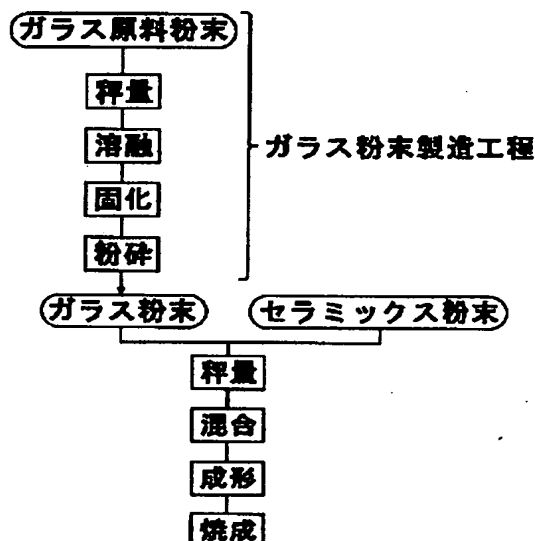
【図3】本発明における熱処理後の粉末のX線回折パターン図である。

【図4】本発明におけるガラスセラミックス複合基板のX線回折パターン図である。

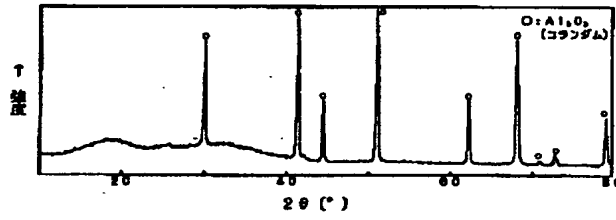
【図5】本発明における熱処理後の粉末のX線回折パターン図である。

【図6】本発明におけるガラスセラミックス複合基板のX線回折パターン図である。

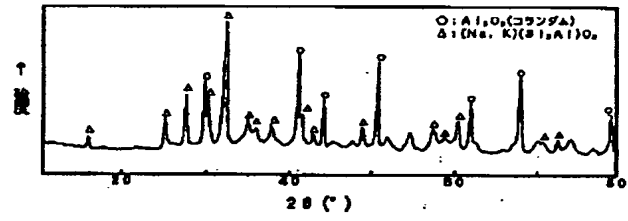
【図2】



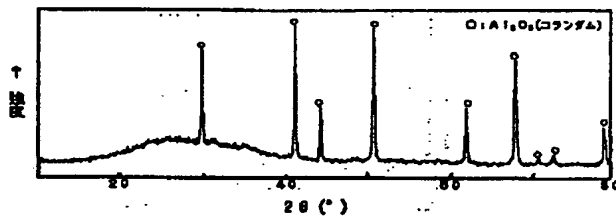
【図3】



【図4】



【図5】



【図6】

